

(19)日本国特許庁 (JP)

(12)公表特許公報(A)

(11)特許出願公表番号

特表2000-514145

(P2000-514145A)

(43)公表日 平成12年10月24日(2000.10.24)

(51)Int.Cl.*

裁判記号

F I

テ-7コ-5*(参考)

D 2 1 H 19/42

D 2 1 H 19/42

C 0 9 C 1/02

C 0 9 C 1/02

C 0 9 D 1/00

C 0 9 D 1/00

審査請求 有 予備審査請求 有 (全 17 頁)

(21)出願番号	特願平10-521844
(60) (22)出願日	平成9年11月7日(1997.11.7)
(85)翻訳文提出日	平成11年5月10日(1999.5.10)
(86)国際出願番号	PCT/US97/20476
(87)国際公報番号	WO98/20201
(87)国際公報日	平成10年5月14日(1998.5.14)
(31)優先権主張番号	08/745,561
(32)優先日	平成8年11月8日(1996.11.8)
(33)優先権主張国	米国(US)

(71)出願人 エス ディ ウォレン サーヴィシーズ
カンパニー
アメリカ合衆国 メイン 04092 ウエス
トブルック カンバーランド ストリート
89

(72)発明者 ガブリラッド, リサ エー
アメリカ合衆国 メイン 04074 スカボ
ロー ジョス ヒル ロード 6

(72)発明者 メイシア, スティーブン エル
アメリカ合衆国 メイン 04092 ウエス
トブルック イースト ブリッジ ストリ
ート 114

(74)代理人 弁理士 志賀 正武 (外1名)
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 コーティング済み印刷用紙およびその製造方法

(57)【要約】

本発明は、全顔料の重量のうち少なくとも80%が沈殿炭酸カルシウム(PCC)とされ、少なくとも5%が中空球形プラスチック顔料とされたコーティング成分の層がコーティングされた新規な高い光沢を有する印刷用紙を提供する。好ましくは、コーティング成分にはさらに二酸化チタンが含有される。さらに、新規な印刷用紙の製造方法を提供する。

【特許請求の範囲】

1. 全顔料の重量のうち少なくとも80%が沈殿炭酸カルシウムとされ、かつ少なくとも5%が中空球形プラスチック顔料とされたコーティング成分である頂部層で少なくとも一面がコーティングされた紙基体を備えていることを特徴とする改良された印刷特性を有する光沢印刷用紙。
2. 前記コーティング成分は、全顔料の重量のうち80～92%の沈殿炭酸カルシウムと、6～12%の中空球形プラスチック顔料とを含有していることを特徴とする請求項1記載の光沢印刷用紙。
3. 前記コーティング成分は、さらに、他の天然あるいは合成の非粘土顔料を複数含有していることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の光沢印刷用紙。
4. 前記他の天然あるいは合成の非粘土顔料のうち少なくとも一つは、二酸化チタンとされていることを特徴とする請求項3記載の光沢印刷用紙。
5. 前記コーティング成分は、全顔料の重量のうち80～84%の沈殿炭酸カルシウムと、6～12%の中空球形プラスチック顔料と、9～12%の二酸化チタンとを含有していることを特徴とする請求項4記載の光沢印刷用紙。
6. 前記コーティング成分は、全顔料の重量のうち85～92%の沈殿炭酸カルシウムと、8～12%の中空球形プラスチック顔料と、6%以下の二酸化チタンとを含有していることを特徴とする請求項4記載の光沢印刷用紙。
7. 前記コーティング成分の前記層の乾燥コーティング重量は、6～11lb／3300ft²とされていることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の光沢印刷用紙。
8. 前記中空球形プラスチック顔料は、約1.0μmの平均直径とされ、かつ約55%の空隙率を有することを特徴とする請求項1または請求項2に記載の光沢印刷用紙。
9. 前記中空球形プラスチック顔料は、アクリルスチレン共重合体で構成されていることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の光沢印刷用紙。
10. 前記沈殿炭酸カルシウムは、粒子の大きさの中央値が約0.6μm、表

面積が約 $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ とされていることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の光沢印刷用紙。

1 1. 前記沈殿炭酸カルシウムは、アスペクト比が $2:1 \sim 3:1$ とされていることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の光沢印刷用紙。

1 2. 全顔料の重量のうち少なくとも80%が沈殿炭酸カルシウムとされ、少なくとも5%が中空球形プラスチック顔料とされ、かつ6%以下が粘土とされたコーティング成分である頂部層で少なくとも一面がコーティングされた紙基体を備えていることを特徴とする改良された印刷特性を有する光沢印刷用紙。

1 3. 前記コーティング成分は、全顔料の重量のうち80~92%の沈殿炭酸カルシウムと、6~12%の中空球形プラスチック顔料とを含有していることを特徴とする請求項1 2記載の光沢印刷用紙。

1 4. 前記コーティング成分は、さらに、他の天然あるいは合成の非粘土顔料を複数含有していることを特徴とする請求項1 2または請求項1 3に記載の光沢印刷用紙。

1 5. 前記他の天然あるいは合成の非粘土顔料のうち少なくとも一つは、二酸化チタンとされていることを特徴とする請求項1 4記載の光沢印刷用紙。

1 6. 前記コーティング成分の前記層の乾燥コーティング重量は、 $6 \sim 11\text{ lb}/3300\text{ft}^2$ とされていることを特徴とする請求項1 2または請求項1 3に記載の光沢印刷用紙。

1 7. 前記中空球形プラスチック顔料は、約 $1.0\mu\text{m}$ の平均直径とされ、かつ約5.5%の空隙率を有することを特徴とする請求項1 2または請求項1 3に記載の光沢印刷用紙。

1 8. 前記中空球形プラスチック顔料は、アクリルスチレン共重合体で構成されていることを特徴とする請求項1 2または請求項1 3に記載の光沢印刷用紙。

1 9. 前記沈殿炭酸カルシウムは、粒子の大きさの中央値が約 $0.6\mu\text{m}$ 、表面積が約 $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ とされていることを特徴とする請求項1 2または請求項1 3に記載の光沢印刷用紙。

2 0. 前記沈殿炭酸カルシウムは、アスペクト比が $2:1 \sim 3:1$ とされてい

ることを特徴とする請求項1 2 または請求項1 3 に記載の光沢印刷用紙。

2 1. 改良された印刷特性を有する光沢印刷用紙の製造方法であって、

a. 全顔料の重量のうち少なくとも80%の沈殿炭酸カルシウムと、少なくとも5%の中空球形プラスチック顔料とを含有するコーティング成分の頂部層を紙基体の少なくとも一つの表面上に形成するステップと、

b. コーティングされた前記基体を乾燥させるステップと、

c. 乾燥されたコーティング済み基体をカレンダーにかけるステップと、

を有することを特徴とする光沢印刷用紙の製造方法。

2 2. 前記コーティング成分は、全顔料の重量のうち80~92%の沈殿炭酸

カルシウムと、6~12%の中空球形プラスチック顔料とを含有していることを特徴とする請求項2 1 記載の光沢印刷用紙の製造方法。

2 3. 前記コーティング成分は、さらに、他の天然あるいは合成の非粘土顔料を複数含有していることを特徴とする請求項2 1 または請求項2 2 に記載の光沢印刷用紙の製造方法。

2 4. 前記他の天然あるいは合成の非粘土顔料のうち少なくとも一つは、二酸化チタンとされていることを特徴とする請求項2 3 記載の光沢印刷用紙の製造方法。

2 5. 前記コーティング成分は、全顔料の重量のうち80~84%の沈殿炭酸カルシウムと、6~12%の中空球形プラスチック顔料と、9~12%の二酸化チタンとを含有していることを特徴とする請求項2 4 記載の光沢印刷用紙の製造方法。

2 6. 前記コーティング成分は、全顔料の重量のうち85~92%の沈殿炭酸カルシウムと、8~12%の中空球形プラスチック顔料と、6%以下の二酸化チタンとを含有していることを特徴とする請求項2 4 記載の光沢印刷用紙の製造方法。

2 7. 改良された印刷特性を有する光沢印刷用紙の製造方法であって、

a. 全顔料の重量のうち少なくとも80%の沈殿炭酸カルシウムと、少なくとも5%の中空球形プラスチック顔料と、6%以下の粘土とを含有するコーティン

グ成分の頂部層を紙基体の少なくとも一つの表面上に形成するステップと、

b. コーティングされた前記基体を乾燥させるステップと、

c. 乾燥されたコーティング済み基体をカレンダーにかけるステップと、

を有することを特徴とする光沢印刷用紙の製造方法。

28. 前記コーティング成分は、全顔料の重量のうち80～92%の沈殿炭酸カルシウムと、6～12%の中空球形プラスチック顔料とを含有していることを特徴とする請求項27記載の光沢印刷用紙の製造方法。

29. 前記コーティング成分は、さらに、他の天然あるいは合成の非粘土顔料を複数含有していることを特徴とする請求項27または請求項28に記載の光沢印刷用紙の製造方法。

30. 前記他の天然あるいは合成の非粘土顔料のうち少なくとも一つは、二酸化チタンとされていることを特徴とする請求項29記載の光沢印刷用紙の製造方法。

【発明の詳細な説明】

コーティング済み印刷用紙およびその製造方法

技術分野

本発明は、高い輝度を有し、高い光沢を有する新規な印刷用紙のコーティング成分、及び、高い光沢を有する印刷用紙を製造する新規な方法に関する。

本発明の背景

当該技術分野において、印刷用紙のコーティング成分の輝度を増加させるために、自然に存する地の (natural ground) 炭酸カルシウム及び沈殿炭酸カルシウムを使用することは周知とされている。ヨーロッパでは、コーティング成分として、比較的高レベルの炭酸カルシウムが日常的に使用されている。しかし、高レベルの炭酸カルシウムは、インクのこすれ (ink rub off) 、シートへのマーキング (sheet marking) 、テールピッキング (tail picking) 等の種々の印刷上の問題を招く可能性がある。これらの問題を最小化するために、たいてい、80重量%あるいはそれ以下のものがコーティング成分として使用される。上記各印刷上の問題を減少させるために、地の炭酸カルシウムに比べて研磨性が少ないことから、沈殿炭酸カルシウムもまた使用される。さらに、高レベルの炭酸カルシウムを含有するコーティングは、概して、つや消しのある軽量コーティング済み用紙または輸転グラビア用紙に限定されてしまう。アメリカ合衆国では、粘土コーティング剤とともに使用するサイズプレス法 (size press solutions) が定式化されており、高レベルの炭酸カルシウムを含有するコーティング剤と共に使用した場合には印刷上の問題を一層悪化させる傾向にある。

紙の光沢、印刷の光沢、不透明度、円滑性等の幅広い種々の紙の特性を改善するのに有用なものとして、中空球形プラスチック顔料が製造業者の間で奨励されている。これら顔料は、重量が減少させられたコーティング剤のかさを増加させるために使用することもできる。高レベルの炭酸カルシウムと共に中空球形プラスチック顔料を使用することは知られていない。

本発明の目的は、印刷上の問題を最小化するとともに、高い輝度および高い光

沢を有する印刷用紙を提供することである。

本発明の他の目的は、高い光沢を有する印刷用紙を製造する方法を提供することである。

本発明の要旨

本発明は、全顔料の重量のうち少なくとも 80% が沈殿炭酸カルシウムとされ、少なくとも 5% が中空球形プラスチック顔料とされたコーティング成分の層が少なくとも一つの表面上にコーティングされた紙基体を備えた光沢印刷用紙を提供する。好ましくは、コーティング成分は、80~92% の沈殿炭酸カルシウムと、6~12% の中空球形プラスチック顔料とを含有している。さらに本発明は、コーティング成分の層が二酸化チタン顔料を含有する光沢印刷用紙を提供する。さらに本発明は、コーティング成分の層が 6% よりも少ない粘土顔料を含有する光沢印刷用紙を提供する。好ましくは、コーティング成分の乾燥コーティング重量は 8、9~16、3 g/m² (6~11 lb/3300ft²) とされ、中空球形プラスチック顔料は約 1.0 μm の平均直径および 55% の空隙率を有するアクリルスチレン (acrylic styrene) 共重合体で構成されており、沈殿炭酸カルシウムは、粒子の大きさの中央値 (median) が約 0.6 μm、表面積が約 1.0 m²/g、アスペクト比が 2:1~3:1 とされている。

さらに、本発明は、少なくとも 80% の沈殿炭酸カルシウムと少なくとも 5% の中空球形プラスチック顔料とを含有するコーティング成分の層を紙基体の少なくとも一つの表面上に形成するステップと、コーティングされた基体を乾燥させるステップと、乾燥されたコーティング済み基体をカレンダーにかけるステップとを有する、光沢印刷用紙を製造する方法を提供する。この方法は、上述した他のコーティング成分と組み合わせることもできる。

本発明の他の目的および有利点は、以下の本発明の好ましい実施形態に関する詳細な説明により、当業者に対して明らかとされる。

本発明の好ましい実施形態の説明

本発明の光沢印刷用紙は、全顔料の重量のうち少なくとも 80% が沈殿炭酸カルシウム (以下「PCC」という。) とされ、少なくとも 5% が中空球形プラスチック顔料とされたコーティング成分で、紙基体をコーティングすることにより

製造される。

本発明により、少なくとも80%のPCCと少なくとも5%の中空プラスチック顔料とを組み合わせて使用することは、優れた品質特性と実質的に改良された印刷特性とを有する印刷用紙を思いがけず製造するものである。この組み合わせは、改良されたコーティングインクの相互作用、インキの吸収、噴水溶液吸収(fountain solution absorption)、並びに、高い光沢および高い輝度を有するとともに円滑で均一な表面を提供するものである。結果として印刷された画像は、高いインキ光沢、高いインキ均一性、および低いマイクログロス(microgloss)を有するものとなる。本発明による印刷用紙はさらに、優れたブリスタ抵抗(blistер resistance)を示すものである。改良された紙の使用特性および印刷特性は、テールピッキング、マーキング及びこすれが実質的に消滅したことより実証される。

本発明のコーティング成分は、少なくとも80重量%のPCCと、少なくとも5重量%の中空球形プラスチック顔料とを含有している。適切なPCCの例としては、Specialty Minerals社により製造されたAlbaglos LとAlbaglos Sがある。PCCは好ましくは、粒子の大きさの中央値が約0.6μmとされているとともに、表面積が約10m²/gとされている。最も好ましくはPCCはアスペクト比が2:1~3:1とされている。

適切な中空球形プラスチック顔料としては、Rohm & Haas CompanyによるRopaq ue HP-1055, OP-96及びHP-91が入手可能とされている。中空球形プラスチック顔料は、好ましくは、平均粒径が約1.0μmとされているとともに、空隙率が約55%とされている。最も好ましくは、中空球形プラスチック顔料は、アクリルスチレン共重合体で構成されている。

本発明のコーティング成分は、さらに、6重量%よりも小さい粘土を含有することができる。コーティング成分として粘土を使用すれば、輝度が減少させられる一方で他の特性を改善させられるということは、当業者であれば知っているだろう。対照的に、本発明において粘土を追加することは、紙の光沢および他の最終製品の特性をも思いがけず減少させるのである。所望の最終製品特性は、コー

ティング組成に使用される粘土の量により決定される。適切な粘土の例としては、ECCT社により入手可能とされたAstra-Plus、Engelhard Corporationにより入手可能とされたAnsilex 93等がある。

さらに好ましくは、本発明のコーティング成分は、天然または合成の非粘土顔料を単独または混合物として含有している。適切な顔料の例としては、アナターゼ(anatase)またはルチル(rutile)状の、二酸化チタン、水酸化アルミ、繊子白、シリカ、有機顔料等がある。これらの顔料は例示として挙げたものであり、本発明に使用される顔料はこれらに限定されないことは理解されるところである。最も好ましくは、非粘土顔料は二酸化チタンとされる。アナターゼ状二酸化チタンの適切な例としては、SCM Chemicals社により入手可能とされたTiONA-A2000がある。

好ましいコーティング成分としては、全顔料の重量のうち80~92%がPCCとされ、6~12%が中空球形プラスチック顔料とされる。高い不透明度が要求される製品に対して最も好ましいコーティング成分は、全顔料の重量のうち80~84%がPCC、6~12%が中空球形プラスチック顔料、9~12%が二酸化チタンとされる。最も好ましいコーティング成分は、最終製品の品質と製造コストをバランスさせると、全顔料の重量のうち85~92%がPCC、8~12%が中空球形プラスチック顔料、6%以下が二酸化チタンとされる。

本発明のコーティング成分は、変更を施さなくてもシート及びウェブの各印刷グレードに対して適している。概して、ウェブ印刷等においては速度が異なりまた高温であるため、各ウェブグレードに対してコーティング成分に変更を施さなければならることは当業者において既知である。ウェブ印刷用紙は、乾燥における水影れ(blistering)を減少させるために、比較的低い温分および比較的多孔性とされた複数のコーティング層を有する傾向にある。

さらに、本発明のコーティング成分は、総ての紙コーティングに要求されるバインダ組織(binder system)を有している。澱粉を含有するバインダ組織は輝度を減少させることは当業者において既知である。最小量の澱粉を含有するラテックス(latex)バインダ組織を使用することが好ましい。本発明で使用することが

できるラテックスバインダとしては、アクリル樹脂、ブタジエンスチレン、スチレンアクリル酸塩(styrene-acrylate)、ウレタン、アクリロニトリル、複数のカルボン酸塩ラテックス(carboxylated latices)等がある。これらのバインダは例示として挙げられたものであり、本発明に使用されるバインダはこれらに限定されるものではない。好ましくは、ブタジエンスチレンとスチレンアクリル酸塩の二種のラテックスを混合したものが本発明では用いられている。

コーティング剤の組成として、染料、螢光増白剤、分散剤、シッカーナー、滑剤、pH制御剤等の種々の添加剤を含有させ得ることは当業者において既知である。コーティング添加剤の使用は最終製品の性質により決定される。本発明は、上記した各添加剤に限定されるものではないことは理解されるところである。

本発明の紙基体は、何らかの製紙纖維を用いた従来の製紙技術により得られるものである。好ましくは、紙基体は上質紙とされる。最終製品の性質および生産性のファクタにより、使用される製紙纖維の特定の混合が決定されるということは当業者であれば理解されるところである。さらに好ましくは、基体は澱粉プレコート剤で塗られる。

本発明のコーティング成分は、種々のコーティング技術に応用することができる。コーティングの適用例としては、カーブ状ブレード、斜面上ブレード、ロッド、ショートドウェル(short dwell)、カーテンコーティング、エアナイフ等がある。本発明はこれらの技術に限定されることは当業者において既知である。さらに、採用されるコーティング技術に応じて、本発明のコーティング成分のレオロジーに関する変更が必要であることは当業者において既知である。

本発明のコーティング成分を塗布する最も好ましい方法は、カーブ状ブレード式コーティング装置を用いて行われ、乾燥コーティング剤重量が片側当たり8.9~16.3g/m²(6~11lb/3300ft²)とされる。ただし本発明は、片側のみがコーティングされた紙製品だけでなく、片側あるいは両側を二重コーティングされた紙製品をも包含するものである。レオロジーおよび塗布されたコーティング剤重量が所望の最終製品特性に応じて変化させられることは当業者において既知である。さらに、コーティング作業は、製紙工程に組み込まれて連続的に行うことができる。

本発明は、乾燥後のコーティング済み紙にカレンダーをかける最終ステップを含むものである。本発明の紙にカレンダーをかける方法は制限されるものではない。独立型のカレンダーまたはスーパーカレンダーにより別個のステップとしてカレンダーをかけることができ、また、製紙工程および／またはコーティング作業に組み込まれて連続的にカレンダーをかけることができる。

以下の実施例は本発明を示すものであり、また当業者が本発明を理解できるようにしたものである。本発明は以下の実施例に限定されることは理解されるところである。特に言及しない限り、百分率は重量パーセントを意味する。

表1には、本発明と比較例について、組成および最終製品の性質が示されている。1～5は本発明を示している。C1～C3は比較例を示している。総てのコーティング成分は、実験室サイズのかまでバッチ式により混合され、5.8～6.0%の最終コーティング固形物とされる。各コーティングごとに、71.0 g/m² (4.8 lb/3300 ft²) の基本重量を有してボディストッキング状 (bodystock) に一側面上にコーティングされた。最終コーティング剤重量は約14.8 g/m² (1.0 lb/3300 ft²) とされた。コーティングされかつ乾燥された試料は、実験室のカレンダー内で、一つのニップ (nip) を介して高温高圧でカレンダーされた。試料を5.0%の一定湿度で24時間整えた後に、各測定が行われた。

表1

	1	2	3	4	5	C1	C2	C3
組成:								
PCC	81	88	86	88	90	100	96.5	0
中空球形プラスチック 顔料	8	6	8	8	6	0	3.5	0
TiO ₂	11	6	6	4	0	0	0	0
粘土	0	0	0	0	4	0	0	75
地の炭酸カルシウム	0	0	0	0	0	0	0	25
性質:								
輝度	92.8	94.0	93.8	92.0	91.3	93.5	94.4	86.3
75°紙光沢	80.7	76.0	81.0	81.0	73.1	50.0	50.0	81.1
20°インク光沢	66.0	69.0	68.5	73.0	57.3	30.4	28.0	60.5
マイクログロス	273	272	270	320	400	189	230	505

マイクログロスは、グロス中における点と点の間の変動の計測であり、画像品質に関連する。Tobias Mottle Tester社の1.5 mmマイクログロスヘッドを用いて測定された。値が小さいほど、表面の光沢がより均一であることを意味する。

本実施例により示された本発明の実施形態は、高い輝度、高い紙光沢、高いインク光沢および低いマイクログロスとされた所望の最終製品特性の釣り合いをとっている。

本発明の好ましい形態について実施例を用いて説明したが、当業者であれば変形を加え得ることは明らかである。本発明は上記各実施形態には限定されず、本発明の思想を逸脱しない限りにおいて改良を施すことができる。

【手続補正書】**【提出日】平成11年5月11日(1999.5.11)****【補正内容】****特許請求の範囲**

1. 全顔料の重量のうち少なくとも80%が沈殿炭酸カルシウムとされ、かつ少なくとも5%が中空球形プラスチック顔料とされたコーティング成分である頂部層で少なくとも一面がコーティングされた紙基体を備えていることを特徴とする改良された印刷特性を有する光沢印刷用紙。

2. 改良された印刷特性を有する光沢印刷用紙の製造方法であって、

a. 全顔料の重量のうち少なくとも80%の沈殿炭酸カルシウムと、少なくとも5%の中空球形プラスチック顔料とを含有するコーティング成分の頂部層を紙基体の少なくとも一つの表面上に形成するステップと、

b. コーティングされた前記基体を乾燥させるステップと、

c. 乾燥されたコーティング済み基体をカレンダーにかけるステップと、

を有することを特徴とする光沢印刷用紙の製造方法。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

		Int'l. Application No. PCT/US 97/20476
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 021H19/30 021H19/42		
According to International Patent Classification(IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 021H		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the files searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category ¹	Classification of document, with indication where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	DE 24 53 910 A (RHONE PROGIL) 28 May 1975 see page 3, paragraph 4 - page 4, paragraph 4; claims; example 13	1,2,7, 12,13, 15,21, 22,27,28
Y	US 3 931 061 A (KOHNE JR HARRY F ET AL) 6 January 1976 see the whole document	1,2,7, 12,13, 16,21, 22,27,28
A,P	US 5 677 043 A (HULTMAN JACK D ET AL) 14 October 1997 ---	
A	FR 2 009 372 A (DOW CHEMICAL CO) 6 February 1970 ---	-/-
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C		<input type="checkbox"/> Parent family members are listed in annex.
<p>¹* Special categories of cited documents:</p> <p>^{1A}* document reflecting the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>^{1B}* earlier document but published on or after the International filing date</p> <p>^{1C}* document which may throw doubt on priority claimed or which is used to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>^{1D}* document relating to an oral disclosure, saga, exhibition or exhibition sample</p> <p>^{1E}* document published prior to the International filing date but later than the priority date claimed</p> <p>^{1F}* later document published after the International filing date or priority date and not earlier than the application but cited to corroborate the principle or theory underlying the invention</p> <p>^{1G}* document of particular relevance (the claimed invention cannot be considered to be new or cannot be claimed to be inventive) which is not cited because it is taken away</p> <p>^{1H}* document of particular relevance (the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other cited documents) which has not been cited due to a justified strike in the list</p> <p>^{1I}* document member of the same patent family</p>		
Date of the visual completion of the international search	Date of mailing of the international search report	
3 March 1998	11/03/1998	
Name and mailing address of the ISA	Authorized officer	
International Patent Office, P.O. Box 5016 Pleasanton, TX 78066-5016, USA Tel: (512) 234-7616, Fax: (512) 234-5016	Songy, O	

Form PCT/SAR10 second sheet (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.
PCT/US 97/20476

C(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
Category	Description of document, with indication where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No.
A	US 4 264 742 A (GOLDEN RONALD ET AL) 28 April 1981 -----
A	WO 94 04603 A (DOW CHEMICAL CO.;LEE DOLK (US); MULDERS MICHAEL R (US); NICHOLSON) 3 March 1994 -----

Form PCT/NA/213 (continuation of second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

INN	Serial Application No
	PCT/US 97/20476

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family members(2)	Publication date
DE 2453910 A	28-05-75	FR 2271333 A FR 2262717 A FR 2286916 A AT 347237 B BE 822238 A BR 7409577 A CH 592777 A DK 592874 A,B, GB 1463340 A JP 50080328 A JP 57002840 B NL 7414875 A SE 7414266 A US 4010307 A	12-12-75 26-09-75 30-04-76 11-12-78 14-05-76 25-05-76 15-11-77 14-07-75 02-02-77 30-06-75 19-01-82 20-05-75 16-05-75 01-03-77
US 3931061 A	06-01-76	NONE	
US 5677043 A	14-10-97	AU 1581897 A WO 9728006 A	22-08-97 07-08-97
FR 209372 A	06-02-70	BE 733548 A DE 1926853 A GB 1229503 A NL 6908016 A,B, SE 362912 B US 3853579 A US 3779800 A	24-11-69 04-12-69 21-04-71 01-12-69 27-12-73 10-12-74 18-12-73
US 4264742 A	28-04-81	CA 1140759 A	08-02-83
WO 9404603 A	03-03-94	CA 2140035 A AU 666332 B AU 2506692 A BR 9207160 A DE 69219904 D DE 69219904 T EP 0656033 A FI 950733 A JP 8500521 T US 5521253 A	03-03-94 08-02-96 15-03-94 31-10-95 26-06-97 11-12-97 07-06-95 17-02-95 23-01-96 28-05-96

フロントページの続き

(81) 指定国 EP(AT, BE, CH, DE,
 DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU,
 MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF,
 CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE,
 SN, TD, TG), AP(GH, KE, LS, MW, SD,
 SZ, UG, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG,
 KZ, MD, RU, TJ, TM, AL, AM, AT,
 AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA,
 CH, CN, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB,
 GE, GH, HU, ID, IL, IS, JP, KE,
 KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT,
 LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO,
 NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG,
 SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA,
 UG, UZ, VN, YU, ZW

(72) 発明者 ワエッカー, トーマス エー
 アメリカ合衆国 メイン 04107 ケイブ
 エリザベス ウェインライト 7

(72) 発明者 ヤデタ, バヘリュー
 アメリカ合衆国 メイン 04074 スカボ
 ロー ウィンザー バインズ ドライブ
 28